VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts B03/0996PC	WEITERES VORG	EHEN	siehe Formblatt PCT/IPEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2005/000752	Internationales Anmelde 26.01.2005	edatum (Tag/Monat/Jahr)	Prioritätsdatum (TagMonatJahr) 26.01.2004	
Internationale Patentklassifikation (IPC) oder INV. C07D233/58	l nationale Klassifikation u	nd IPC		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT				
Bei diesem Bericht handelt es sich internationalen vorläufigen Prüfun Artikel 36 übermittelt wird.	n um den internationale g beauftragten Behörd	n vorläufigen Prüfungsb e nach Artikel 35 erstellt	oericht, der von der mit der wurde und dem Anmelder gemäß	
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 7 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.				
3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen				
a. 🗵 (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 2 Blätter; dabei handelt es sich um				
Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).				
Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.				
angeben) , der/die ein Seg	uenzprotokoll und/oder	die dazugehörigen Tab	der/des elektronischen Datenträger(s) ellen enthält/enthalten, nur in ingegeben (siehe Abschnitt 802 der	
4. Dieser Bericht enthält Angaben zu	folgenden Punkten:			
Feld Nr. I Grundlage des E	Berichts			
☐ Feld Nr. II Priorität		•		
☐ Feld Nr. III Keine Erstellung Anwendbarkeit	eines Gutachtens übe	r Neuheit, erfinderische	Tätigkeit und gewerbliche	
☐ Feld Nr. IV Mangelnde Einh	eitlichkeit der Erfindung	9		
Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Arikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung				
□ Feld Nr. VI Bestimmte ange	führte Unterlagen		•	
Feld Nr. VII Bestimmte M\u00e4n\u00e4	gel der internationalen a	Anmeldung		
□ Feld Nr. VIII Bestimmte Beme	erkungen zur internatio	nalen Anmeldung		
Datum der Einreichung des Antrags		Datum der Fertigstellung	dieses Berichts	
10.11.2005	·	17.05.2006		
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde		Bevollmächtigter Bediens	Steter	
Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d		Molina de Alba, J		
Fax: +49 89 2399 - 4465		Tel. +49 89 2399-7823	- Participa e catalo e e e e e e e e e e e e e e e e e e e	

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP2005/000752

_	Feld Nr. I	Grundlage des Berichts	
1.		der Sprache beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.	
		richt beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:	
	☐ Ver	rnationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b)) öffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4) rnationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)	
2.	Anmeldean	der Bestandteile* der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf <i>(Ersatzblätter, die dem</i> nt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als ch eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt):	
Beschreibung, Seiten			
	1-25	in der ursprünglich eingereichten Fassung	
	Ansprüche,	Nr.	
	1-12	eingereicht mit dem Antrag	
	☐ einem Sequenzpro	Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das tokoll	
3.	•	nd der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen: chreibung: Seite	
	☐ Ans	prüche: Nr. hnungen: Blatt/Abb.	
	☐ Seq	uenzprotokoll (genaue Angaben):	
	⊔ etwa	aige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (genaue Angaben):	
4.	aufgelistete	Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigefügten und nachstehend nächderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen c)).	
		chreibung: Seite prüche: Nr.	
	☐ Zeid	hnungen: Blatt/Abb. uenzprotokoll <i>(genaue Angaben)</i> :	
		aige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen <i>(genaue Angaben)</i> :	
		Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung V versehen werden	

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP2005/000752

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)

Ja: Ansprüche 9-12

Nein: Ansprüche 1-8

Erfinderische Tätigkeit (IS)

Ja: Ansprüche

Nein: Ansprüche 1-12

Gewerbliche Anwendbarkeit (IA)

Ja: Ansprüche: 1-12

Nein: Ansprüche:

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen

1. Bestimmte veröffentlichte Unterlagen (Regel 70.10)

und / oder

2. Nicht-schriftliche Offenbarungen (Regel 70.9)

siehe Beiblatt

Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:

siehe Beiblatt

Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:

siehe Beiblatt

10/587248

IAP11 Rec'd PCT/PTO 26 JUL 2006 Internationales Aktenzeichen

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ZUR PATENTIERBARKEIT (BEIBLATT)

PCT/EP2005/000752

- 1) Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:
 - D1: WO 2005/019183 A (BASF AKTIENGESELLSCHAFT; MAASE, MATTHIAS; MASSONNE, KLEMENS) 3. März 2005 (2005-03-03)
 - D2: WO 01/77081 A (THE QUEEN'S UNIVERSITY OF BELFAST; EARLE, MARTYN, JOHN; SEDDON, KENNET) 18. Oktober 2001 (2001-10-18)
 - **D3**: EP-A-0 291 074 (MITSUBISHI PETROCHEMICAL CO., LTD) 17. November 1988 (1988-11-17)
- 2) Die vorliegende Anmeldung bezieht sich auf ein Verfahren zur Modifizierung ionischer Flüssigkeiten, die als Kation ein Phosphonium- und/oder Ammoniumkation enthalten und bei dem das Anion ein Halogenid, Arylsulfat, Alkylsulfonat, Sulfat, Hydrogensulfat, Alkylsulfat, Hydrogencarbonat, Carbonat, Triflat oder Carboxylat ist. Im ersten Verfahrensschritt wird die ionische Flüssigkeit mit einem Alkoholat, Hydrogencarbonat, Carbonat, Carboxylat oder Hydroxid umgesetzt. Die resultierende basische Flüssigkeit wird in einem zweiten Verfahrensschritt mit einer Säure neutralisiert. Die Anmeldung bezieht sich weiter auf ionische Füssigkeiten der Formel [Q+] [BR+n(OR+)m-] und deren Lösungen.

3) Zu Punkt I

Die am 10.11.2005 eingereichten Änderungen bringen Sachverhalte ein, die im Widerspruch zu Artikel 34(2)(b) PCT über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgehen. Es handelt sich dabei um die Definition des Kations [Q+] in Anspruch 9 als "Phosphonium- und/oder Ammonium-Kation". Die Anmelderin hat als Basis für diese Änderung die Passage auf S. 4, Z. 6-7 erwähnt. Jedoch wird [Q+] dabei nicht bloß als "ein Phosphonium- und/oder Ammonium-Kation" definiert, sondem als ein Phosphonium- und/oder Ammonium-Kation ausgewählt aus einer Liste verschiedener angegebener Gruppen (vgl. S. 4, Z. 4-S. 7, Z. 8). Die Entfernung dieser Einschränkung resultiert in einer Erweiterung des ursprünglichen Sachverhalts der Anmeldung.

Die folgende Prüfung der Patentbarkeit basiert daher auf einem Anspruchsatz bei dem das Merkmal [Q⁺] so definiert ist, wie in der ursprünglichen Fassung der Anmeldung geschehen - und zwar wie auf S. 4, Z. 4-S. 7, Z. 8.

4) Zu Punkt V

4.1 Neuheit (Art. 33(2) PCT)

D2 offenbart ein Verfahren zur Herstellung von Imidazol-Carbene aus Imidazolium-Chloriden in höher Ausbeute (90-95 %). Das Verfahren erfolgt durch Erhitzen des Imidazolium-Chlorids in der Anwesenheit einer starken Base wie Alkalimetal-Alkoxid, Natriumhydrid oder Natriumamid (vgl. S. 1, Z. 5-6 und 17-19; S. 3, Z. 1-11 und 19-35). Die geformten Carbene werden im Kugelrohr destilliert und durch Reaktion mit einer Säure, die das gewünschte Anion enthält, zu flüssigen Imidazolium-Salzen umgesetzt (vgl. S. 4, Z. 17-S. 5, Z. 10 und S. 6, Z. 28-29). In den Beispielen werden 1,3-Dialkyl-Imidazol-Carbene hergestellt durch Zugabe von Kalium-t-Butoxid zum entsprechenden 1,3-Dialkyl-Imidazoliumchlorid. Umsatz des Carbens mit einer Säure oder mit einem Alkohol ergibt die flüssigen 1,3-Dialkyl-Imidazoliumsalze wie z.B. 1-Butyl-3-Methylimidazolium-Hydrogencarbonat, 1-Ethyl-3-Methylimidazolium-Methoxid, 1-Butyl-3-Methylimidazolium-Propoxid, 1-Butyl-3-Methylimidazolium-Acetat, 1-Hexyl-3-Methylimidazolium-Hydrogencarbonat und 1-Octyl-3-Methylimidazolium-Acetat.

Auch wenn im unabhängigen Anspruch 1 erwähnt wird, dass die Umsetzung der zu modifizierenden ionischen Flüssigkeit mit einer starken Base in einer stark basischen ionischen Flüssigkeit resultiert, scheint bei den erfindungsgemäßen Beispielen I.1 bis I.5 (Alkoholatmethode) nicht der Fall zu sein. Bei diesen Beispielen wurden die gleichen Flüssigkeiten und Basen als Anfangsprodukte umgesetzt wie in **D2**. Unter diesen Bedingungen ist es aus **D2** klar, dass das hergestellte Zwischenprodukt ein Carben ist und nicht eine ionische Flüssigkeit. Daher ist der Umfang des Anpruchs 1 unklar (Art. 6 PCT) und kann nicht aus dem in **D2** beschriebenen Verfahren unterschieden werden. Folglich wird **D2** als relevant für die Neuheit der Ansprüche 1 bis 8 angesehen.

D3 beschreibt ein Verfahren für die Herstellung von hochreinen Ammonium- oder Phosphoniumquartären durch Reaktion eines tertiären Amins oder Phosphins mit einem Kohlensäurediester (vgl. S. 3, Z. 32-45). Das erhaltene Ammonium- oder Phosphoniumcarbonat wird durch Zugabe einer beliebigen Säure decarboxyliert, was die Herstellung des Ammonium- oder Phosphoniumsalzes mit dem gewünschten Anion erlaubt. Gemäß D3 ist diese Methode eine Alternative zum bekannten Verfahren für die Herstellung von Ammonium- oder Phosphoniumsalzen. Ein Ammonium- oder Phosphoniumhalid wird

zuerst durch Anionaustausch zu Ammonium- oder Phosphoniumhydroxid umgesetzt. Danach ergibt die Zugabe einer Säure das gewünschte Ammonium- oder Phosphoniumsalz (vgl. S. 2, Z. 42-47 und S. 3, Z. 15-21). **D3** ist nicht relevant für die Neuheit der Anmeldung indem es allgemeine Ammonium- und Phosphoniumsalze erwähnt aber nicht <u>flüssige</u> Ammonium- oder Phosphoniumsalze.

4.2 Erfinderische Tätigkeit (Art. 33(3) PCT)

In Folge der oben erhobenen Neuheitseinwände, kann nur der Gegenstand der Ansprüche 9-12 als neu angesehen werden. Dieser Gegenstand ist doch offensichtlich im Hinblick auf die in **D2** und **D3** beschriebenen Verfahren zur Herstellung von Ammonium- oder Phosphoniumquartären. Da die in den Ansprüchen 9-12 beanspruchten ionischen Flüssigkeiten keine unerwarteten Eigenschaften aufweisen, kann eine erfinderische Tätigkeit für die vorliegende Anmeldung nicht anerkannt werden.

4.3 Gewerbliche Anwendbarkeit (Art. 33(4) PCT)

Wird für alle Ansprüche anerkannt.

5) Zu Punkt VI

D1 wurde nach dem Anmeldedatum (26.01.2005) der vorliegenden Anmeldung veröffentlicht, und zwar am 03.03.2005. Gemäß Regel 64.1(b)(ii) PCT gehört D1 nicht zum Stand der Technik. Im europäischen Verfahren wird D1 aber zum Stand der Technik gemäß Art. 54(3) EPÜ gehören, da dieses Dokument die frühere Priorität vom 21.07.2003 beansprucht.

6) Zu Punkt VII

Im Widerspruch zu den Erfordernissen der Regel 5.1 a) ii) PCT werden in der Beschreibung weder der in den Dokumenten **D1-D3** offenbarte einschlägige Stand der Technik noch diese Dokumente angegeben.

7) Zu Punkt VIII

Die Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 6 PCT, weil Anspruch 1 nicht klar ist:

- Die Herstellungen von EMIM Acetat, EMIM Saccharinat, EMIM Dihydrogenborat und EMIM Cyanurat auf S. 23, Z. 26-34 und auf S. 24, Z. 11-S. 25, Z. 2 (Beispiele II.3 und II.5-II.7, Bariummethode) entsprechen nicht dem in Anspruch 1 beschriebenen Verfahren. Während in Anspruch 1 klar definiert wird, dass das beanspruchte Verfahren zwei Schritte enthält, und zwar:
 - a. Umsetzung der zu modifizierenden ionischen Flüssigkeit mit einer Base und
- b. Neutralisierung mit einer Säure der aus a. resultierenden Flüssigkeit, wird bei den Herstellungen auf S. 23, Z. 26-34 und auf S. 24, Z. 11-S. 25, Z. 2 die zu modifizierende Flüssigkeit ausschließlich mit einem Salz umgesetzt.
- Anspruch 1 beschreibt ein Verfahren, bei dem die Umsetzung der zu modifizierenden ionischen Flüssigkeit mit einer starken Base in einer stark basischen ionischen Flüssigkeit resultiert. Jedoch entsprechen die erfindungsgemäßen Beispielen I.1 bis I.5 (Alkoholatmethode) diesem Verfahren nicht, denn, wie in **D2** gezeigt, bei den genannten Beispielen sind die Zwischenprodukte keine ionischen Flüssigkeiten, sondem Carbene. Dieser Widerspruch zwischen den Ansprüchen und Beispielen macht den Gegenstand der Ansprüche unklar.



5

10

20

30

35



26 **10/587248**IAP11 Rec'd PCT/PTO 26 JUL 2006¹

Geänderte Patentansprüche

- 1. Verfahren zur Modifizierung ionischer Flüssigkeiten, die als Kation ein Phosphonium- und/oder Ammoniumkation und ein Anion, das ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus Halogeniden, Arylsulfonaten, Alkylsulfonaten, Sulfat, Hydrogensulfat, Alkylsulfaten, Hydrogencarbonat, Carbonat, Triflaten und Carboxylaten, enthält, dadurch gekennzeichnet, dass diese ionischen Flüssigkeiten in einem ersten Verfahrensschritt mit einem Alkoholat, einem Hydrogencarbonat, einem Carbonat, einem Carboxylat oder einem Hydroxid umgesetzt werden, wobei stark basische ionische Flüssigkeiten resultieren, und die stark basischen ionischen Flüssigkeiten in einem zweiten Verfahrensschritt mit einer Säure neutralisiert werden.
- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass bei Einsatz von Alkoholaten nach der in dem zweiten Verfahrensschritt erfolgenden Neutralisation in der Neutralisation gebildeter Alkohol destillativ entfernt wird.
 - 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass nach dem ersten Verfahrensschritt der ausgefallene Feststoff abgetrennt wird.
 - 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die ionische Flüssigkeit ein heterocyclisches Kation enthält.
- Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass die ionische Flüssig keit ein Imidazolium-Kation enthält.
 - 6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass in dem zweiten Verfahrensschritt eine Neutralisation der stark basischen ionischen Flüssigkeit mit einer Säure bis zu einem pH-Wert erfolgt, der dem Äquivalenzpunkt des entsprechenden Säure-Base-Paares entspricht.
 - 7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung in dem ersten Verfahrensschritt bei einer Temperatur von 5 bis 100°C stattfindet.
 - 8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung in dem zweiten Verfahrensschritt bei einer Temperatur von 10 bis 100°C stattfindet.





5

10

15



- 9. Ionische Flüssigkeit der allgemeinen Formel [Q⁺] [BR n(OR n) mit [Q⁺] Phosphonium- und/oder Ammonium-Kation und n = 1, 2, 3 und m = 4 n, wobei R' und R", jeweils unabhängig voneinander, ausgewählt sind aus der Gruppe, bestehend aus Wasserstoff, C₁-C₁₈-Alkyl, C₆-C₁₂-Aryl, C₅-C₁₂-Cycloalkyl, gegebenenfalls durch ein oder mehrere Sauerstoff- und/oder Schwefelatome und/oder ein oder mehrere substituierte oder unsubstituierte Iminogruppen unterbrochenes C₂-C₁₈-Alkyl, oder einen fünf- bis sechsgliedrigen, Sauerstoff-, Stickstoff- und/oder Schwefelatome aufweisenden Heterocyclus bedeuten oder zwei von ihnen gemeinsam einen ungesättigten, gesättigten oder aromatischen und gegebenenfalls durch ein oder mehrere Sauerstoff- und/oder Schwefelatome und/oder ein oder mehrere substituierte oder unsubstituierte Iminogruppen unterbrochenen Ring bilden, wobei die genannten Reste jeweils durch funktionelle Gruppen, Aryl, Alkyl, Aryloxy, Alkyloxy, Halogen, Heteroatome und/oder Heterocyclen substituiert und Reste R' miteinander verbunden sein können.
 - Ionische Flüssigkeiten nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass R' Phenyl und n gleich 3 ist.
- 20 11. Ionische Flüssigkeiten nach Anspruch 9 oder 10, dadurch gekennzeichnet, das das Kation [Q⁺] ein N,N-Dialkylimidazolium-Kation ist.
 - 12. Lösungen, enthaltend mindestens eine ionische Flüssigkeit gemäß einem der Ansprüche 9 bis 11.



